

10 03 DEC 2004

10/516674

PO/EP 03/05949

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



REC'D 16 JUL 2003

WIPO

PCT

Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen: 102 27 656.0

Anmeldetag: 20. Juni 2002

Anmelder/Inhaber: BASF Aktiengesellschaft,
Ludwigshafen/DE

Bezeichnung: Fungizide Mischungen auf der Basis von
Benzamidoxim-Derivaten, Benzophenonen und
einem Azol

IPC: A 01 N 43/653

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 02. Mai 2003
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

Miebinge

A 916
08/00
EDV-L

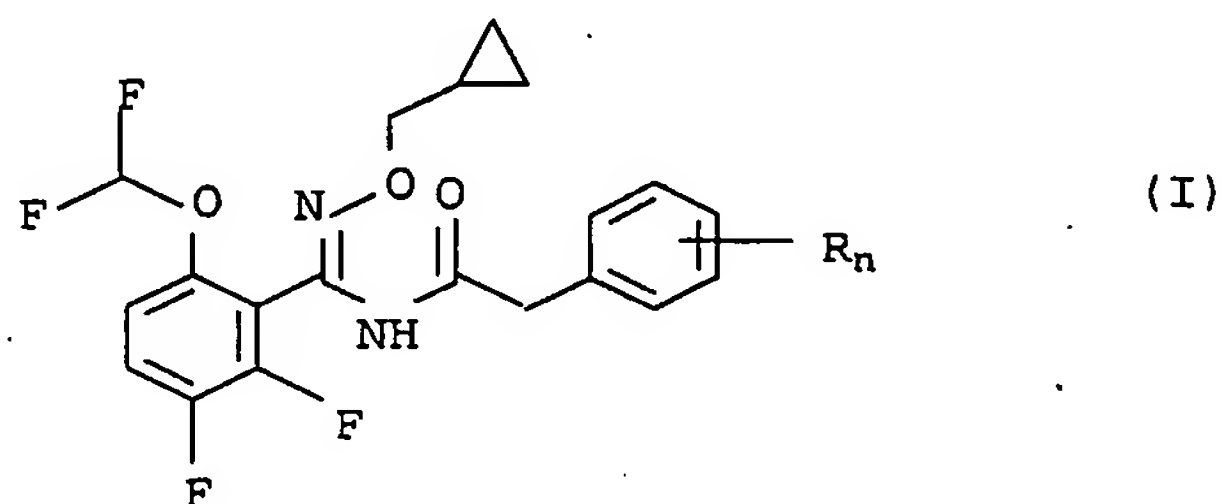
Patentansprüche

1. Fungizide Mischungen, enthaltend als aktive Komponenten

5

(1) ein Benzamidoxim-Derivat der Formel I

10



15

wobei der Substituent und der Index die folgenden Bedeutungen haben kann:

20

R Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Halogenalkoxy

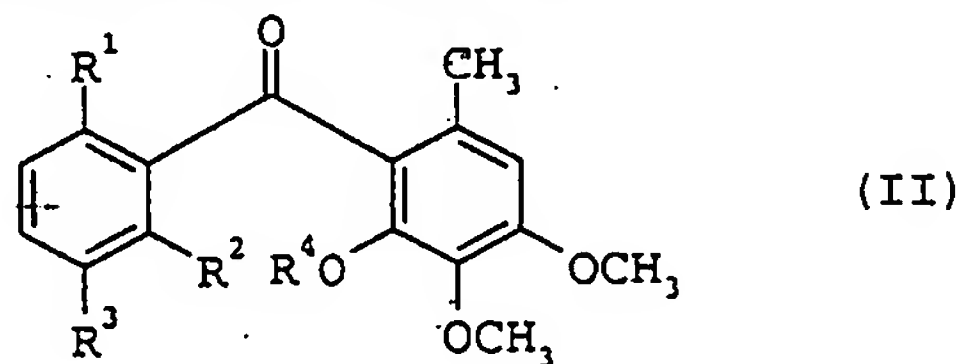
n 1, 2 oder 3,

25

und

(2) ein Benzophenone der Formel II,

30



35

in der

R¹ für Chlor, Methyl, Methoxy, Acetoxy, Pivaloyloxy oder Hydroxy;

40

R² für Chlor oder Methyl;

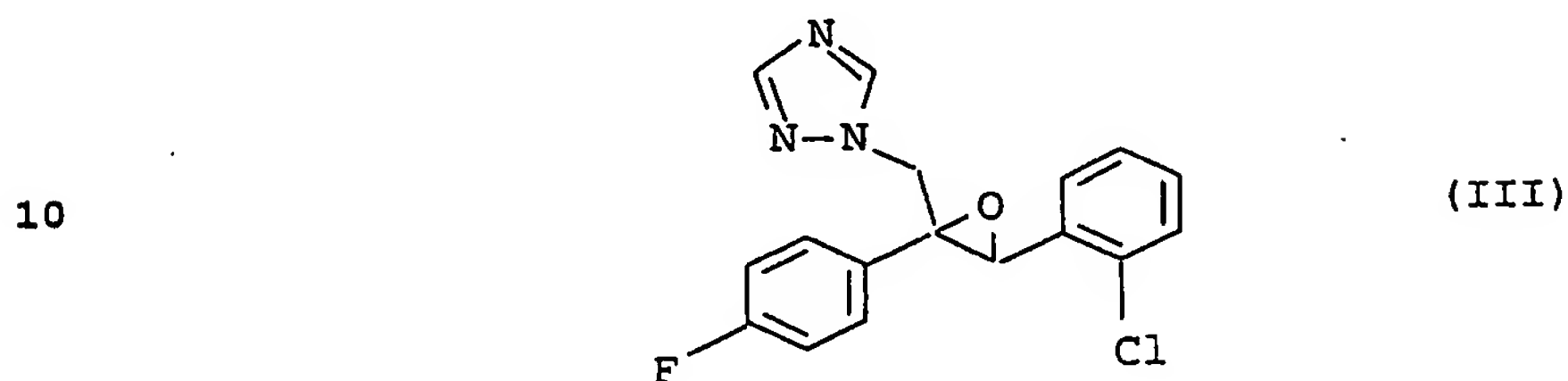
R³ für Wasserstoff, Halogen oder Methyl; und

45

2

R⁴ für C₁-C₆-Alkyl oder Benzyl stehen, wobei der Phenylteil des Benzylrestes einen Halogen oder Methylsubstituenten tragen kann, und

5 (3) Epoxiconazol der Formel III

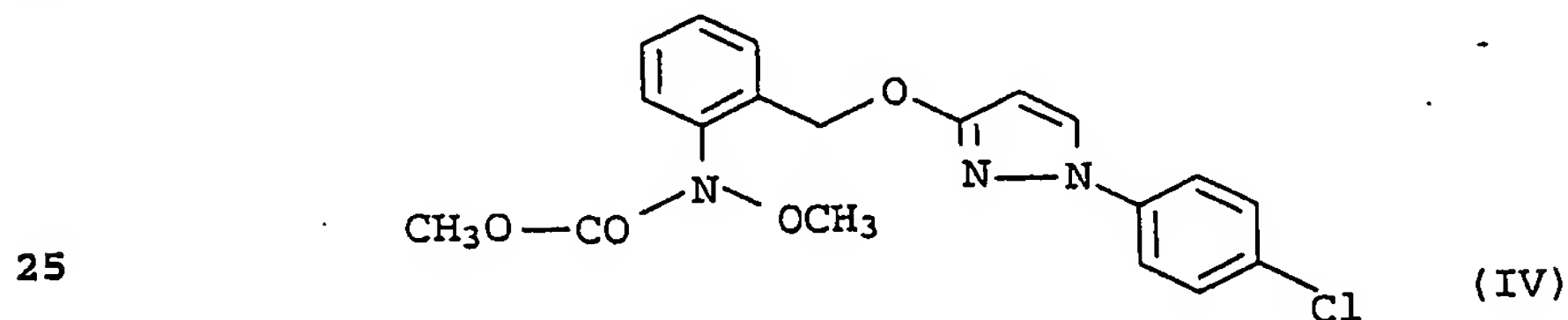


15 in einer synergistisch wirksamen Menge.

2. Fungizide Mischungen nach Anspruch 1, weiterhin enthaltend

(4) Pyraclostrobin der Formel IV

20



25

30 3. Fungizide Mischung nach Anspruch 1, wobei in der Formel I der Rest R für Wasserstoff steht.

4. Fungizide Mischungen nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei in der Formel II

35 R¹ für Methoxy, Acetoxy oder Hydroxy
R² für Methyl,
R³ für Wasserstoff, Chlor oder Brom, und
R⁴ für C₁-C₄-Alkyl steht.

40 5. Fungizide Mischungen nach Anspruch 4, wobei in der Formel II

R¹ für Methoxy
R², R⁴ für Methyl und
R³ für Brom steht.

45

3

6. Fungizide Mischung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Gewichtsverhältnis des Benzamidoxim-Derivates der Formel I zu dem Benzophenon der Formel II und dem Epoxiconazol der Formel III 20 : 1 : 1 bis 1 : 20 : 20 beträgt.

5

7. Verfahren zur Bekämpfung von Schadpilzen, dadurch gekennzeichnet, daß man die Schadpilze, deren Lebensraum oder die von ihnen freizuhaltenden Pflanzen, Samen, Böden, Flächen, Materialien oder Räume mit der fungiziden Mischung gemäß Anspruch 1 behandelt.

10

8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß man die Verbindungen der Formeln I, II und III gemäß Anspruch 1 gleichzeitig, und zwar gemeinsam oder getrennt, oder nacheinander ausbringt.

15

9. Verfahren nach Anspruch 7 oder 8, dadurch gekennzeichnet, daß man die fungizide Mischung oder die Verbindungen der Formeln I, II und III in einer Menge von 0,01 bis 8 kg/ha aufwendet.

20

10. Fungizide Mittel, enthaltend die fungizide Mischung gemäß Anspruch 1 sowie einen festen oder flüssigen Träger.

25

30

35

40

45

Fungizide Mischungen auf der Basis von Benzamidoxim-Derivaten,
Benzophenonen und einem Azol

5 Beschreibung

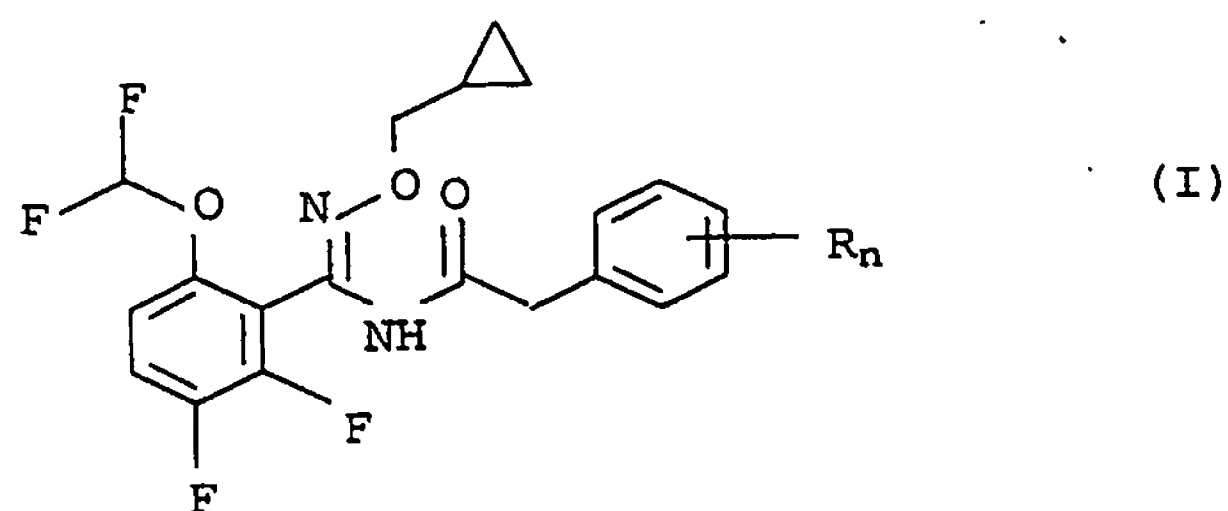
Die vorliegende Erfindung betrifft

Fungizide Mischungen, enthaltend als aktive Komponenten

10

(1) ein Benzamidoxim-Derivat der Formel I

15



20

wobei der Substituent und der Index die folgenden Bedeutungen ha-
ben kann:

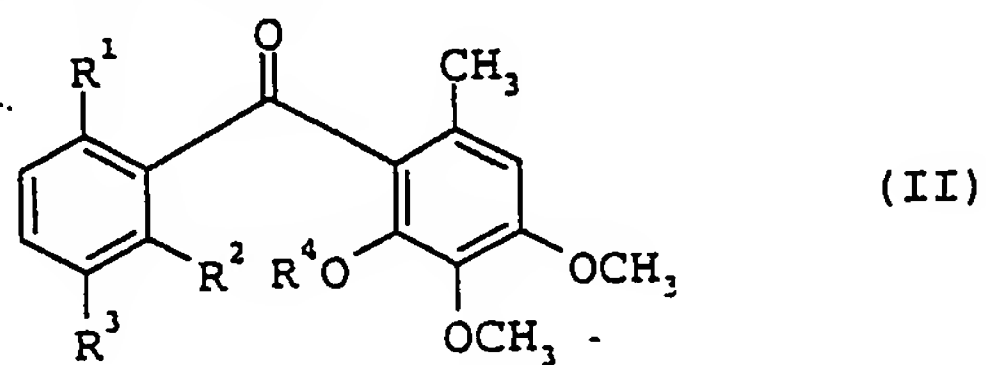
25 R Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl,
C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Halogenalkoxy

n 1, 2 oder 3,

30 und

(2) ein Benzophenone der Formel II,

35



in der

40

R¹ für Chlor, Methyl, Methoxy, Acetoxy, Pivaloyloxy oder Hy-
droxy;

R² für Chlor oder Methyl;

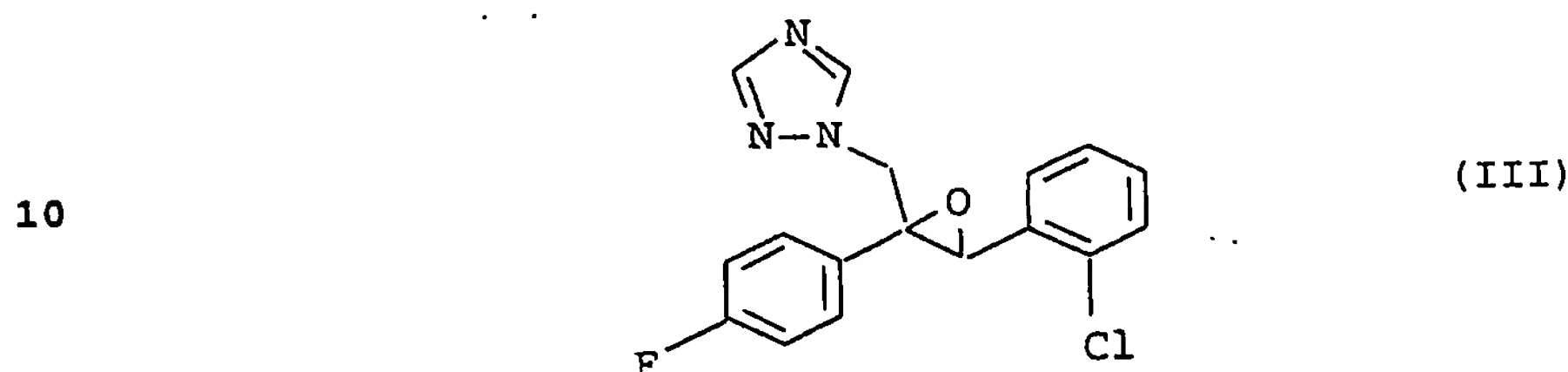
45

R³ für Wasserstoff, Halogen oder Methyl; und

2

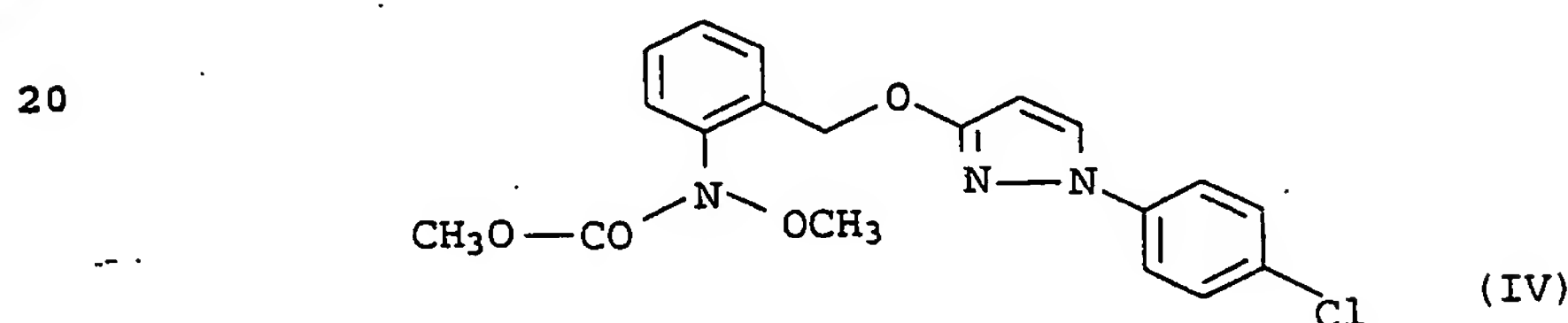
R⁴ für C₁-C₆-Alkyl oder Benzyl stehen, wobei der Phenylteil des Benzylrestes einen Halogen oder Methylsubstituenten tragen kann, und

5 (3) Epoxiconazole der Formel III



15 und ggf.

(4) Pyraclostrobin der Formel IV



25

in einer synergistisch wirksamen Menge.

Außerdem betrifft die Erfindung ein Verfahren zur Bekämpfung von Schadpilzen mit Mischungen der Verbindung I, II, III und ggf. IV
30 und die Verwendung der Verbindungen I, II, III und ggf. IV zur Herstellung derartiger Mischungen sowie Mittel, die diese Mischungen enthalten.

Aus der EP-A-1017670 sind Benzamidoxim-Derivate der Formel I be-
35 kannt.

Aus den EP-B 531,837, EP-A 645,091 und WO 97/06678 sind fungizide Mischungen bekannt, die als eine Wirkstoffkomponente ein Azol
enthalten.

40

Die Verbindungen der Formel II, ihre Herstellung und ihre Wirkung gegen Schadpilze sind aus der Literatur bekannt (EP-A 727 141; EP-A 897 904; EP-A 899 255; EP-A 967 196).

45 Mischungen von Benzophenonen der Formel II mit anderen fungiziden Wirkstoffen sind aus EP-A 1 023 834 bekannt.

3

Das Epoxiconazol der Formel III, dessen Herstellung und deren Wirkung gegen Schadpilze ist an sich aus der EP-A 196038 bekannt.

Pyraclostrobin der Formel IV ist aus der EP-A 0 804 421 bekannt.

5

Der vorliegenden Erfindung lag die Aufgabe zugrunde, weitere Mittel zur Bekämpfung von Schadpilzen und insbesondere für bestimmte Indikationen zur Verfügung zu stellen.

- 10 Überraschenderweise wurde nun gefunden, daß diese Aufgabe mit einer Mischung gelöst wird, welche als Wirkstoffe Benzamidoxim-Derivate der eingangs definierten Formel I und als weitere fungizid wirksame Komponenten einen fungiziden Wirkstoff aus der Klasse der Benzophenone, Azole und ggf. Stobilurine enthält.

15

Die erfindungsgemäßen Mischungen wirken synergistisch und sind daher zur Bekämpfung von Schadpilzen und insbesondere von echten Mehltaupilzen in Getreide, Gemüse und Reben besonders geeignet.

- 20 Im Rahmen der vorliegenden Erfindung steht Halogen für Fluor, Chlor, Brom und Jod und insbesondere für Fluor, Chlor und Brom.

Der Ausdruck "Alkyl" umfaßt geradkettige und verzweigte Alkylgruppen. Vorzugsweise handelt es sich dabei um geradkettige oder

- 25 verzweigte C₁-C₄-Alkylgruppen. Beispiele für Alkylgruppen sind Alkyl wie insbesondere Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl und 1,1-Dimethylethyl.

Halogenalkyl steht für eine wie oben definierte Alkylgruppe, die
30 mit einem oder mehreren Halogenatomen, insbesondere Fluor und Chlor, teilweise oder vollständig halogeniert ist. Vorzugsweise sind 1 bis 3 Halogenatome vorhanden, wobei die Difluormethan/-oder die Trifluormethylgruppe besonders bevorzugt ist.

- 35 Die obigen Ausführungen zur Alkylgruppe und Halogenalkylgruppe gelten in entsprechender Weise für die Alkyl- und Halogenalkylgruppe in Alkoxy und Halogenalkoxy.

Der Rest R in der Formel I steht vorzugsweise für ein Wasser-
40 stoffatom.

Die folgenden Verbindungen der Formel II sind als Mischungspartner bevorzugt, wobei die einzelnen Bevorzugungen für sich allein genommen und in Kombination zu lesen sind.

45

4

Bevorzugt sind Verbindungen II, in denen R¹ für Chlor, Methoxy, Acetoxy oder Hydroxy steht und insbesondere bevorzugt sind Verbindungen, in denen R¹ Methoxy, Acetoxy oder Hydroxy bedeutet. Ganz besonders bevorzugt sind Verbindungen, in denen R¹ Methoxy-
5 bedeutet.

Erfindungsgemäß sind Mischungen enthaltend Verbindungen II, in denen R² Chlor oder Methyl bedeutet. Bevorzugt sind Verbindungen I, in denen R² Methyl bedeutet.

10

Außerdem sind Verbindungen II bevorzugt, in denen R³ für Wasserstoff, Methyl, Chlor oder Brom und insbesondere bevorzugt für Wasserstoff, Chlor oder Brom steht.

15 Daneben sind Verbindungen II bevorzugt, in denen R⁴ für C₁-C₄-Alkyl oder Benzyl stehen, wobei der Phenylteil des Benzylrestes einen Halogen oder Methylsubstituenten tragen kann. Insbesondere bevorzugt sind Verbindungen der Formel II, in der R⁴ für C₁-C₄-Alkyl und vorzugsweise Methyl steht.

20

Weiterhin bevorzugt sind Verbindungen der Formel II, in der die Substituenten R¹, R², R³ und R⁴ die folgende Bedeutung haben:

R¹ Methoxy, Acetoxy oder Hydroxy;

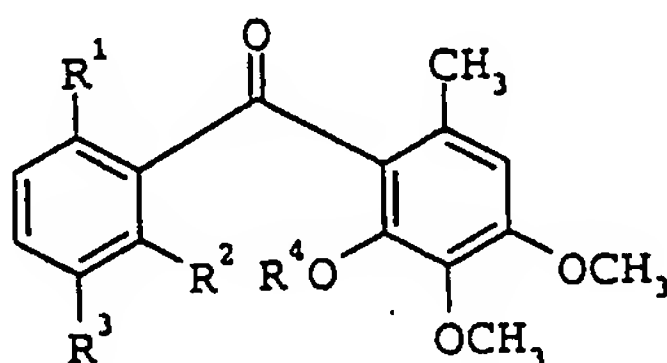
R² Methyl;

25 R³ Wasserstoff, Chlor oder Brom; und

R⁴ C₁-C₄-Alkyl.

Daneben sind Verbindung der Formel II besonders bevorzugt, in denen die Substituenten die in der folgenden Tabelle 1 gegebenen

30 Bedeutungen haben:



II

35

Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
II-1	Methoxy	Cl	H	Methyl
40 II-2	Methoxy	Cl	Methyl	Methyl
II-3	Methoxy	Cl	H	n-Propyl
II-4	Methoxy	Cl	H	n-Butyl
II-5	Methoxy	Cl	H	Benzyl
45 II-6	Methoxy	Cl	H	2-Fluorobenzyl
II-7	Methoxy	Cl	H	3-Fluorobenzyl
II-8	Methoxy	Cl	H	4-Fluorophenyl

5

Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
II-9	Methoxy	Cl	H	2-Methylphenyl
II-10	Methoxy	Cl	H	3-Methylphenyl
II-11	Methoxy	Cl	H	4-Methylphenyl
II-12	Methoxy	Cl	Br	Methyl
II-13	Methoxy	Cl	Br	n-Propyl
II-14	Methoxy	Cl	Br	n-Butyl
II-15	Methoxy	Cl	Br	Benzyl
II-16	Methoxy	Cl	Br	2-Fluorobenzyl
II-17	Methoxy	Methyl	H	Methyl
II-18	Methoxy	Methyl	Cl	Methyl
II-19	Methoxy	Methyl	H	n-Propyl
II-20	Methoxy	Methyl	H	n-Butyl
II-21	Methoxy	Methyl	H	Benzyl
II-22	Methoxy	Methyl	H	2-Fluorobenzyl
II-23	Methoxy	Methyl	H	3-Fluorobenzyl
II-24	Methoxy	Methyl	H	4-Fluorophenyl
II-25	Methoxy	Methyl	H	2-Methylphenyl
II-26	Methoxy	Methyl	H	3-Methylphenyl
II-27	Methoxy	Methyl	H	4-Methylphenyl
II-28	Methoxy	Methyl	Br	Methyl
II-29	Methoxy	Methyl	Br	n-Propyl
II-30	Methoxy	Methyl	Br	n-Butyl
II-31	Methoxy	Methyl	Br	Benzyl
II-32	Methoxy	Methyl	Br	2-Fluorobenzyl
II-33	Acetoxy	Methyl	H	Methyl
II-34	Acetoxy	Methyl	Cl	Methyl
II-35	Acetoxy	Methyl	Br	Methyl
II-36	Hydroxy	Methyl	H	Methyl
II-37	Hydroxy	Methyl	Cl	Methyl
II-38	Hydroxy	Methyl	Br	Methyl
II-39	Pivaloyloxy	Methyl	H	Methyl
II-40	Pivaloyloxy	Methyl	Cl	Methyl
II-41	Pivaloyloxy	Methyl	Br	Methyl
II-42	Cl	Cl	H	Methyl
II-43	Cl	Cl	H	n-Propyl
II-44	Cl	Cl	H	n-Butyl
II-45	Cl	Cl	H	Benzyl
II-46	Cl	Cl	H	2-Fluorobenzyl
II-47	Cl	Cl	H	3-Fluorobenzyl

Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
II-48	Cl	Cl	H	4-Fluorophenyl
II-49	Cl	Cl	H	2-Methylphenyl
5 II-50	Cl	Cl	H	3-Methylphenyl
II-51	Cl	Cl	H	4-Methylphenyl
II-52	Cl	Cl	Br	Methyl
II-53	Cl	Cl	Br	n-Propyl
10 II-54	Cl	Cl	Br	n-Butyl
II-55	Cl	Cl	Br	Benzyl
II-56	Cl	Cl	Br	2-Fluorobenzyl
II-57	Methyl	Methyl	H	Methyl
II-58	Methyl	Methyl	H	n-Propyl
15 II-59	Methyl	Methyl	H	n-Butyl
II-60	Methyl	Methyl	H	Benzyl
II-61	Methyl	Methyl	H	2-Fluorobenzyl
II-62	Methyl	Methyl	H	3-Fluorobenzyl
20 II-63	Methyl	Methyl	H	4-Fluorophenyl
II-64	Methyl	Methyl	H	2-Methylphenyl
II-65	Methyl	Methyl	H	3-Methylphenyl
II-66	Methyl	Methyl	H	4-Methylphenyl
25 II-67	Methyl	Methyl	Br	Methyl
II-68	Methyl	Methyl	Br	n-Propyl
II-69	Methyl	Methyl	Br	n-Butyl
II-70	Methyl	Methyl	Br	Benzyl
30 II-71	Methyl	Methyl	Br	2-Fluorobenzyl

Als Azolderivat enthalten die erfindungsgemäßen Mischungen Epoxiconazol der Formel III. Die erfindungsgemäßen Mischungen können noch Pyraclostrobin der Formel IV enthalten.

35 Um die synergistische Wirkung zu entfalten, genügt bereits ein geringer Anteil an Benzamidoxim-Derivat der Formel I. Vorzugsweise werden Benzamidoxim-Derivat, Benzophenon und Epoxiconazol in einem Gewichtsverhältnis im Bereich von 20:1:1 bis 1:20:20, insbesondere 10:1:1 bis 1:10:10 eingesetzt.

40 Epoxiconazol der Formel III ist wegen des basischen Charakters der in ihm enthaltenden Stickstoffatome in der Lage, mit anorganischen oder organischen Säuren oder mit Metallionen Salze oder Addukte zu bilden.

45

Beispiele für anorganische Säuren sind Halogenwasserstoffsäuren wie Fluorwasserstoff, Chlorwasserstoff, Bromwasserstoff und Jodwasserstoff, Schwefelsäure, Phosphorsäure und Salpetersäure.

- 5 Als organische Säuren kommen beispielsweise Ameisensäure, Kohlensäure und Alkansäuren wie Essigsäure, Trifluoressigsäure, Trichloressigsäure und Propionsäure sowie Glycolsäure, Thiocyan-säure, Milchsäure, Bernsteinsäure, Zitronensäure, Benzoesäure, Zimtsäure, Oxalsäure, Alkylsulfonsäuren (Sulfonsäuren mit gerad-
- 10 kettigen oder verzweigten Alkylresten mit 1 bis 20 Kohlenstoff-atomen), Arylsulfonsäuren oder -disulfonsäuren (aromatische Reste wie Phenyl und Naphthyl welche eine oder zwei Sulfonsäuregruppen tragen), Alkylphosphonsäuren (Phosphonsäuren mit geradkettigen oder verzweigten Alkylresten mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen),
- 15 Arylphosphonsäuren oder -diphosphonsäuren (aromatische Reste wie Phenyl und Naphthyl welche eine oder zwei Phosphorsäurereste tragen), wobei die Alkyl- bzw. Arylreste weitere Substituenten tragen können, z.B. p-Toluolsulfonsäure, Salizylsäure, p-Amino-salizylsäure, 2-Phenoxybenzoesäure, 2-Acetoxybenzoesäure etc.

20

- Als Metallionen kommen insbesondere die Ionen der Elemente der ersten bis achten Nebengruppe, vor allem Chrom, Mangan, Eisen, Kobalt, Nickel, Kupfer, Zink und daneben der zweiten Hauptgruppe, vor allem Calcium und Magnesium, der dritten und vierten Haupt-
- 25 gruppe, insbesondere Aluminium, Zinn und Blei in Betracht. Die Metalle können dabei gegebenenfalls in verschiedenen ihnen zu-kommenden Wertigkeiten vorliegen.

- Wird Pyroclortrobin IV mitverwendet, so werden Benzamidoxim-Deri-
- 30 vat I, Benzophenon II, Epoxiconazol III und Pyraclostrobin IV in einem Gewichtsverhältnis von 20:1:1:1 bis 1:20:20:20, bevorzugt 10:1:1:1 bis 1:10:10:10 eingesetzt.

- Bevorzugt setzt man bei der Bereitstellung der Mischungen die
- 35 reinen Wirkstoffe I bis III und ggf. IV ein, denen man weitere Wirkstoffe gegen Schadpilze oder gegen andere Schädlinge wie In-sekten, Spinn-tiere oder Nematoden oder auch herbizide oder wachstumsregulierende Wirkstoffe oder Düngemittel beimischen kann.

40

- Die Mischungen aus den Verbindungen I mit II, III und ggf. IV bzw. die Verbindungen I und II, III und ggf. IV gleichzeitig, ge-meinsam oder getrennt angewandt, zeichnen sich durch eine hervor-ragende Wirkung gegen ein breites Spektrum von pflanzenpathogenen
- 45 Pilzen, insbesondere aus der Klasse der Ascomyceten, Basidiomyceten, Phycomyceten und Deuteromyceten aus. Sie sind

z.T. systemisch wirksam und können daher auch als Blatt- und Bodenfungizide eingesetzt werden.

Besondere Bedeutung haben sie für die Bekämpfung einer Vielzahl von Pilzen an verschiedenen Kulturpflanzen wie Baumwolle, Gemüsepflanzen (z.B. Gurken, Bohnen, Tomaten, Kartoffeln und Kürbisgewächse), Gerste, Gras, Hafer, Bananen, Kaffee, Mais, Obstpflanzen, Reis, Roggen, Soja, Wein, Weizen, Zierpflanzen, Zuckerrohr sowie an einer Vielzahl von Samen.

10

Insbesondere eignen sie sich zur Bekämpfung der folgenden pflanzenpathogenen Pilze: *Blumeria graminis* (echter Mehltau) an Getreide, *Erysiphe cichoracearum* und *Sphaerotheca fuliginea* an Kürbisgewächsen, *Podosphaera leucotricha* an Äpfeln, *Uncinula*

15

necator an Reben, *Puccinia*-Arten an Getreide, *Rhizoctonia*-Arten an Baumwolle, Reis und Rasen, *Ustilago*-Arten an Getreide und Zuckerrohr, *Venturia inaequalis* (Schorf) an Äpfeln, *Helminthosporium*-Arten an Getreide, *Septoria nodorum* an Weizen, *Botrytis cinerea* (Grauschimmel) an Erdbeeren, Gemüse, Zierpflanzen und Reben,

20

Cercospora arachidicola an Erdnüssen, *Pseudocercospora* *herpotrichoides* an Weizen und Gerste, *Pyricularia oryzae* an Reis, *Phytophthora infestans* an Kartoffeln und Tomaten, *Plasmopara viticola* an Reben, *Pseudoperonospora*-Arten in Hopfen und Gurken, *Alternaria*-Arten an Gemüse und Obst, *Mycosphaerella*-Arten in

25

Bananen sowie *Fusarium*- und *Verticillium*-Arten.

Besonders bevorzugt sind die erfindungsgemäßen Mischungen zur Bekämpfung von echten Mehltaupilzen in Getreide-, Reben- und Gemüse- kulturen sowie in Zierpflanzen einsetzbar.

30

Die Verbindung I, II, III und ggf. IV können gleichzeitig, und zwar gemeinsam oder getrennt, oder nacheinander aufgebracht werden, wobei die Reihenfolge bei getrennter Applikation im allgemeinen keine Auswirkung auf den Bekämpfungserfolg hat.

35

Die Aufwandmengen der erfindungsgemäßen Mischungen liegen, vor allem bei landwirtschaftlichen Kulturflächen, je nach Art des gewünschten Effekts bei 0,01 bis 8 kg/ha, vorzugsweise 0,1 bis 5 kg/ha, insbesondere 0,5 bis 3,0 kg/ha.

40

Die Aufwandmengen liegen dabei für die Verbindungen I bei 0,01 bis 2,5 kg/ha, vorzugsweise 0,05 bis 2,5 kg/ha, insbesondere 0,1 bis 1,0 kg/ha.

45

Die Aufwandmengen für die Verbindungen II und III sowie ggf. IV liegen entsprechend bei 0,01 bis 10 kg/ha, vorzugsweise 0,05 bis 5 kg/ha, insbesondere 0,05 bis 2,0 kg/ha.

- 5 Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Aufwandmengen an Mischung von 0,001 bis 250 g/kg Saatgut, vorzugsweise 0,01 bis 100 g/kg, insbesondere 0,01 bis 50 g/kg verwendet.

- 10 Sofern für Pflanzen pathogene Schadpilze zu bekämpfen sind, erfolgt die getrennte oder gemeinsame Applikation der Verbindungen I, II, III und ggf. IV oder deren Mischungen aus den Verbindungen I, II und III sowie ggf. IV durch Besprühen oder Bestäuben der Samen, der Pflanzen oder der Böden vor oder nach der Aussaat der Pflanzen oder vor oder nach dem Auflaufen der Pflanzen.

15

Die erfindungsgemäßen fungiziden synergistischen Mischungen bzw. die Verbindungen I, II, III und ggf. IV können beispielsweise in Form von direkt versprühbaren Lösungen, Pulver und Suspensionen oder in Form von hochprozentigen wäßrigen, öligen oder sonstigen

- 20 Suspensionen, Dispersionen, Emulsionen, Öldispersionen, Pasten, Stäubemitteln, Streumitteln oder Granulaten aufbereitet und durch Versprühen, Vernebeln, Verstäuben, Verstreuen oder Gießen angewendet werden. Die Anwendungsform ist abhängig vom Verwendungszweck; sie soll in jedem Fall eine möglichst feine und gleichmäßige Verteilung der erfindungsgemäßen Mischung gewährleisten.

- Die Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Verstrecken des Wirkstoffs mit Lösungsmitteln und/oder Trägerstoffen, gewünschtenfalls unter Verwendung von Emulgiermitteln und Dispergiermitteln, wobei im Falle von Wasser als Verdünnungsmittel auch andere organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden können. Als Hilfsstoffe kommen dafür im wesentlichen in Betracht: Lösungsmittel wie Aromaten (z.B. Xylol), chlorierte Aromaten (z.B. Chlorbenzole), Paraffine (z.B. Erdölfraktionen), Alkohole (z.B. Methanol, Butanol), Ketone (z.B. Cyclohexanon), Amine (z.B. Ethanolamin, Dimethylformamid) und Wasser; Trägerstoffe wie natürliche Gesteinsmehle (z.B. Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide) und synthetische Gesteinsmehle (z.B. hochdisperse Kieselsäure, Silikate); Emulgiermittel wie nicht-ionogene und anionische Emulgatoren (z.B. Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, Alkylsulfonate und Arylsulfonate) und Dispergiermittel wie Ligninsulfitablaugen und Methylcellulose.

- Als oberflächenaktive Stoffe kommen die Alkali-, Erdalkali-, Ammoniumsalze von aromatischen Sulfonsäuren, z.B. Lignin-, Phenol-, Naphthalin- und Dibutylnaphthalinsulfonsäure, sowie von Fettsäuren, Alkyl- und Alkylarylsulfonaten, Alkyl-, Laurylether-

und Fettalkoholsulfaten, sowie Salze sulfatierter Hexa-, Hepta- und Octadecanole oder Fettalkoholglycolethern, Kondensationsprodukte von sulfoniertem Naphthalin und seinen Derivaten mit Formaldehyd, Kondensationsprodukte des Naphthalins bzw. der Naphthalinsulfonsäuren mit Phenol und Formaldehyd, Polyoxyethylenoctylphenolether, ethoxyliertes Isooctyl-, Octyl- oder Nonylphenol, Alkylphenol- oder Tributylphenylpolyglycolether, Alkylarylpolyetheralkohole, Isotridecylalkohol, Fettalkohol-ethylenoxid-Kondensate, ethoxyliertes Rizinusöl, Polyoxyethylenalkylether oder Polyoxypropylen, Laurylalkoholpolyglycoletheracetat, Sorbitester, Lignin-Sulfitablaugen oder Methylcellulose in Betracht.

Pulver Streu- und Stäubemittel können durch Mischen oder gemeinsames Vermahlen der Verbindung I, II, III und ggf. IV oder der Mischung aus den Verbindungen I, II, III und ggf. IV mit einem festen Trägerstoff hergestellt werden.

Granulate (z.B. Umhüllungs-, Imprägnierungs- oder Homogengranulate) werden üblicherweise durch Bindung des Wirkstoffs oder der Wirkstoffe an einen festen Trägerstoff hergestellt.

Als Füllstoffe bzw. feste Trägerstoffe dienen beispielsweise Mineralerden wie Silicagel, Kieselsäuren, Kieselgele, Silikate, Talkum, Kaolin, Kalkstein, Kalk, Kreide, Bolus, Löß, Ton, Dolomit, Diatomeenerde, Calcium- und Magnesiumsulfat, Magnesiumoxid, gemahlene Kunststoffe, sowie Düngemittel wie Ammoniumsulfat, Ammoniumphosphat, Ammoniumnitrat, Harnstoffe und pflanzliche Produkte wie Getreidemehl, Baumrinden-, Holz- und Nußschalenmehl, Cellulosepulver oder andere feste Trägerstoffe.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen 0,1 bis 95 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 90 Gew.-% einer der Verbindungen I, II oder III oder ggf. IV bzw. der Mischung aus den Verbindungen I, II und III. Die Wirkstoffe werden dabei in einer Reinheit von 90% bis 100%, vorzugsweise 95% bis 100% (nach NMR- oder HPLC-Spektrum) eingesetzt.

Die Anwendung der Verbindungen I, II, III oder ggf. IV der Mischungen oder der entsprechenden Formulierungen erfolgt so, daß man die Schadpilze, deren Lebensraum oder die von ihnen freizuhaltenden Pflanzen, Samen, Böden, Flächen, Materialien oder Räume mit einer fungizid wirksamen Menge der Mischung, bzw. der Verbindungen I, II und III sowie ggf. IV bei getrennter Ausbringung, behandelt.

11

Die Anwendung kann vor oder nach dem Befall durch die Schadpilze erfolgen.

Beispiele für solche Zubereitungen, welche die Wirkstoffe enthalten, sind:

- I. eine Lösung aus 90 Gew.-Teilen der Wirkstoffe und 10 Gew.-Teilen N-Methylpyrrolidon, die zur Anwendung in Form kleinster Tropfen geeignet ist;
- 10 II. eine Mischung aus 20 Gew.-Teilen der Wirkstoffe, 80 Gew.-Teilen Xylol, 10 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 8 bis 10 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ölsäure-N-monoethanolamid, 5 Gew.-Teilen Calciumsalz der Dodecylbenzolsulfonsäure, 5 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl; durch feines Verteilen der Lösung in Wasser erhält man eine Dispersion;
- 15 III. eine wäßrige Dispersion aus 20 Gew.-Teilen der Wirkstoffe, 40 Gew.-Teilen Cyclohexanon, 30 Gew.-Teilen Isobutanol, 20 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl;
- 20 IV. eine wäßrige Dispersion aus 20 Gew.-Teilen der Wirkstoffe, 25 Gew.-Teilen Cyclohexanol, 65 Gew.-Teilen einer Mineralölfraction vom Siedepunkt 210 bis 280°C und 10 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl;
- 25 V. eine in einer Hammermühle vermahlene Mischung aus 80 Gew.-Teilen der Wirkstoffe, 3 Gew.-Teilen des Natriumsalzes der Diisobutyl-naphthalin-1-sulfonsäure, 10 Gew.-Teilen des Natriumsalzes einer Ligninsulfonsäure aus einer Sulfitablaue und 7 Gew.-Teilen pulverförmigem Kieselsäuregel; durch feines Verteilen der Mischung in Wasser erhält man eine Spritzbrühe;
- 30 VI. eine innige Mischung aus 3 Gew.-Teilen der Wirkstoffe und 97 Gew.-Teilen feinteiligem Kaolin; dieses Stäubemittel enthält 3 Gew.-% Wirkstoff;
- 35 VII. eine innige Mischung aus 30 Gew.-Teilen der Wirkstoffe, 92 Gew.-Teilen pulverförmigem Kieselsäuregel und 8 Gew.-Teilen Paraffinöl, das auf die Oberfläche dieses Kieselsäuregels gesprüht wurde; diese Aufbereitung gibt dem Wirkstoff eine gute Haftfähigkeit;
- 40 VIII. eine stabile wäßrige Dispersion aus 40 Gew.-Teilen der Wirkstoffe, 10 Gew.-Teilen des Natriumsalzes eines Phenolsulfonsäure-Harnstoff-Formaldehyd-Kondensates, 2 Gew.-Teilen Kieselgel und 48 Gew.-Teilen Wasser, die weiter verdünnt werden kann;
- 45 IX. eine stabile ölige Dispersion aus 20 Gew.-Teilen der Wirkstoffe, 2 Gew.-Teilen des Calciumsalzes der Dodecylbenzol-

12

sulfonsäure, 8 Gew.-Teilen Fettalkohol-polyglykolether, 20 Gew.-Teilen des Natriumsalzes eines Phenolsulfonsäure-Harnstoff-Formaldehydkondensates und 88 Gew.-Teilen eines paraffinischen Mineralöls.

5

Anwendungsbeispiel

Die synergistische Wirkung der erfindungsgemäßen Mischungen läßt sich durch die folgenden Versuche zeigen:

10

Die Wirkstoffe werden getrennt oder gemeinsam als 10%ige Emulsion in einem Gemisch aus 63 Gew.-% Cyclohexanon und 27 Gew.-% Emulgator aufbereitet und entsprechend der gewünschten Konzentration mit Wasser verdünnt.

15

Die Auswertung erfolgt durch Feststellung der befallenen Blattflächen in Prozent. Diese Prozent-Werte werden in Wirkungsgrade umgerechnet. Der Wirkungsgrad (W) wird nach der Formel von Abbot wie folgt bestimmt:

20

$$W = (1 - \alpha) \cdot 100 / \beta$$

α entspricht dem Pilzbefall der behandelten Pflanzen in % und

β entspricht dem Pilzbefall der unbehandelten (Kontroll-) Pflanzen in %

25

Bei einem Wirkungsgrad von 0 entspricht der Befall der behandelten Pflanzen demjenigen der unbehandelten Kontrollpflanzen; bei einem Wirkungsgrad von 100 wiesen die behandelten Pflanzen keinen Befall auf.

30

Die zu erwartenden Wirkungsgrade der Wirkstoffmischungen wurden nach der Colby Formel [R.S. Colby, Weeds 15, 20-22 (1967)] ermittelt und mit den beobachteten Wirkungsgraden verglichen.

35

$$\text{Colby Formel: } E = x + y - x \cdot y / 100$$

E zu erwartender Wirkungsgrad, ausgedrückt in % der unbehandelten Kontrolle, beim Einsatz der Mischung aus den Wirkstoffen A und B in den Konzentrationen a und b

40

x der Wirkungsgrad, ausgedrückt in % der unbehandelten Kontrolle, beim Einsatz des Wirkstoffs A in der Konzentration a

y der Wirkungsgrad, ausgedrückt in % der unbehandelten Kontrolle, beim Einsatz des Wirkstoffs B in der Konzentration b

45

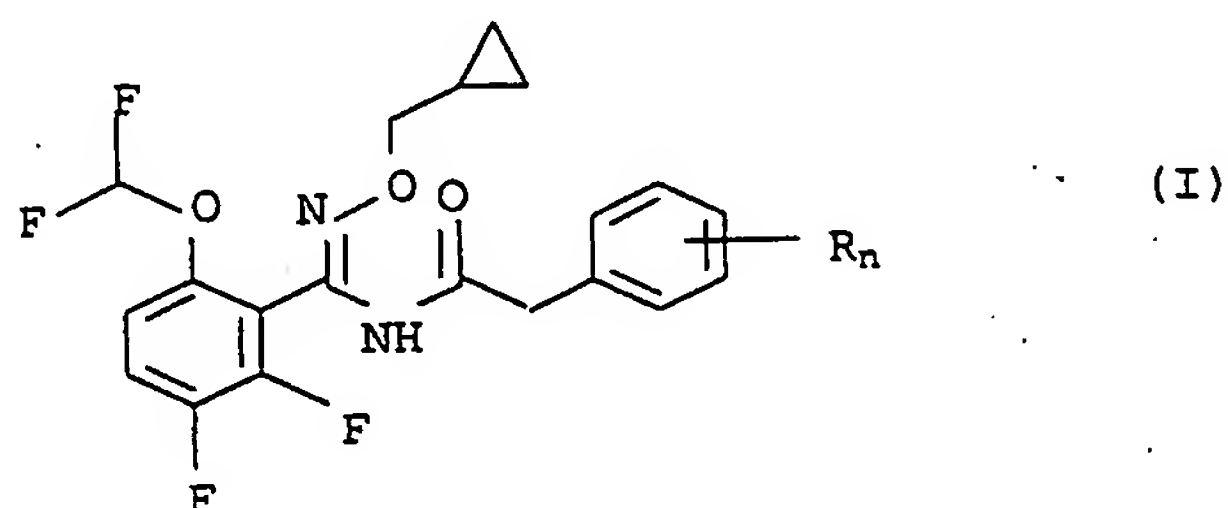
Fungizide Mischungen auf der Basis von Benzamidoxim-Derivaten,
Benzophenonen und einem Azol

5 Zusammenfassung

Fungizide Mischungen, enthaltend als aktive Komponenten

(1) ein Benzamidoxim-Derivat der Formel I

10



15

20 wobei der Substituent und der Index die folgenden Bedeutungen ha-
ben kann:

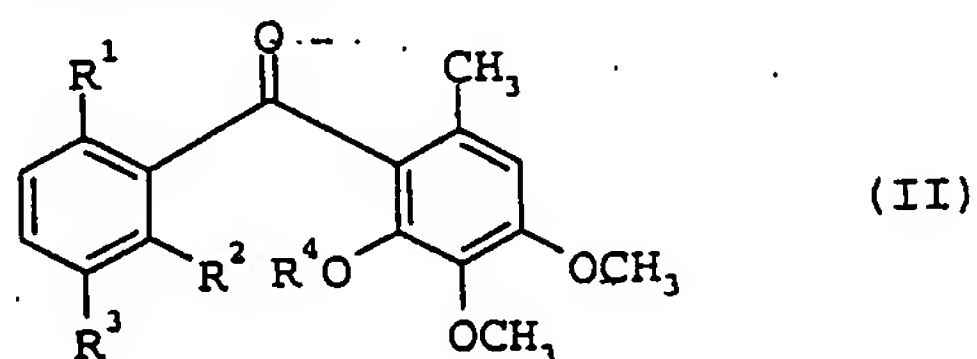
R Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl,
C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Halogenalkoxy

25

n 1, 2 oder 3,

und

30 (2) ein Benzophenone der Formel II,



35

in der

40 R¹ für Chlor, Methyl, Methoxy, Acetoxy, Pivaloyloxy oder Hy-
droxy;

R² für Chlor oder Methyl;

R³ für Wasserstoff, Halogen oder Methyl; und

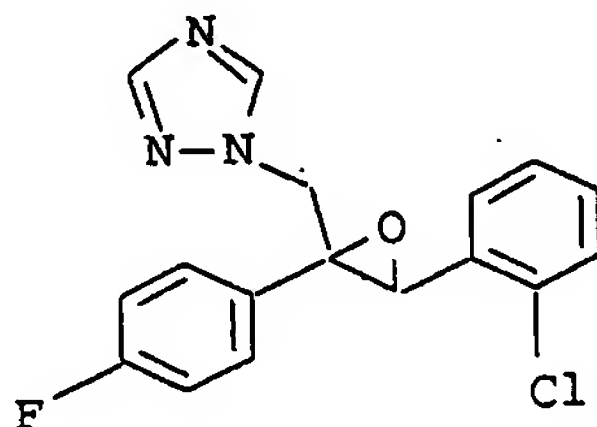
45

2

R⁴ für C₁-C₆-Alkyl oder Benzyl stehen, wobei der Phenylteil des Benzylrestes einen Halogen oder Methylsubstituenten tragen kann, und

5 (3) Epoxiconazole der Formel III

10

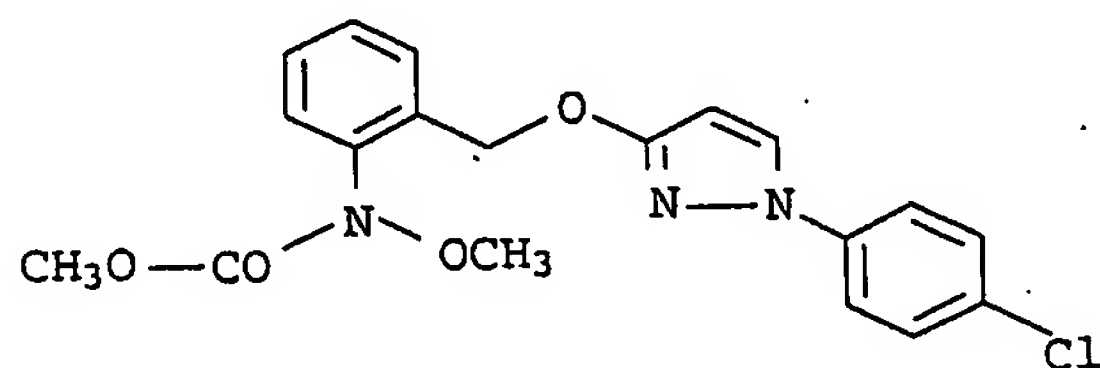


(III)

15 und ggf.

(4) Pyraclostrobin der Formel IV

20



(IV)

25

in einer synergistisch wirksamen Menge.

30

35

40

45

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.